

激光诱导击穿光谱技术结合 TrAdaBoost 算法的 煤粉颗粒流定量分析

陈翊翔, 董美蓉*, 蔡俊斌, 陈泓杰, 尚子瀚, 陆继东

(华南理工大学电力学院, 广东省 广州市 510640)

Quantitative Analysis of Coal Particle Flow by Laser Induced Breakdown Spectroscopy Based on TrAdaBoost Algorithm

CHEN Yixiang, DONG Meirong*, CAI Junbin, CHEN Hongjie, SHANG Zihan, LU Jidong

(School of Power Electric College, South China University of Technology, Guangzhou 510640, Guangdong Province, China)

ABSTRACT: In the laser induced breakdown spectroscopy (LIBS) detection process of coal particle flow, the unstable fluctuation of particle flow affects the stability of laser-material interaction, which has a negative effect on the quantitative analysis results. In this work, a quantitative analysis method for coal particle flow by LIBS based on the TrAdaBoost algorithm is proposed. The stable spectral data from the pressed pellet coal samples are migrated during calibration modeling to correct the fluctuation bias of the particle flow data. It can improve the accuracy of the measurement of the coal particle flow. By investigating the similarity of the spectral properties in the coal pellet and particle flow, a regression prediction model incorporating both data is developed. The results show that the coefficients of determination of the volatile matter content, calorific value, and ash content of coal quantification analysis models using TrAdaBoost reach 0.996, 0.934, and 0.937, respectively, which are significantly improved compared with the conventional prediction models for particle flow using the PLSR algorithm. The measurements demonstrate that the proposed transfer learning method has a promising prospect in improving particle flow quantitative analysis of LIBS.

KEY WORDS: laser-induced breakdown spectroscopy; quantitative analysis of coal; particle flow; transfer learning; TrAdaBoost

摘要: 将激光诱导击穿光谱(laser-induced breakdown spectroscopy, LIBS)技术应用于煤粉颗粒流煤质定量分析过程中, 颗粒流的不稳定波动会影响激光-物质相互作用的稳

定性, 对定量分析结果产生负面影响。该文提出一种基于 TrAdaBoost 迁移学习算法的煤粉颗粒流 LIBS 定量分析方法, 在定标建模时将煤粉压片样品的稳定光谱数据迁移至煤粉颗粒流光谱数据来修正减小颗粒流数据的波动偏差, 以辅助提高颗粒流工业指标分析测量的准确性。通过研究煤粉在压片和颗粒流状态下的光谱特性, 建立同时包含两者数据的回归预测模型。结果表明, 采用迁移算法建立的燃煤挥发分、热值、灰分定量分析模型的决定系数分别达到 0.996、0.934、0.937, 与传统的使用 PLSR 算法的颗粒流预测模型相比, 有明显的提升。可知, 提出的迁移学习方法在 LIBS 应用于颗粒流定量分析中具有应用前景。

关键词: 激光诱导击穿光谱; 煤质分析; 颗粒流; 迁移学习; TrAdaBoost

0 引言

2020 年, 中国制定了在 2030 年实现碳达峰、2060 年前实现碳中和的目标。目前, 煤炭仍然是我国最重要的一次能源, 大规模的煤炭燃烧对经济、节能和碳排放等方面具有重要影响, 煤炭能源清洁高效应用与转化成为实现碳达峰碳中和战略目标的关键问题^[1]。工业生产中快速准确获取煤质信息指标能够实现煤炭转化与利用的实时调控, 直接关系到能源转化效率与污染物的排放^[2-3], 因此, 实现实时煤质信息状态快速分析至关重要。激光诱导击穿光谱技术(laser-induced breakdown spectroscopy, LIBS)是一种基于激光烧蚀的原子发射光谱分析技术, 具有样品无需处理、微烧蚀、多元素同时分析等优点, 已被广泛应用于工业现场元素检测和定量分析^[4-6]。目前, 在煤炭工业中, LIBS 已被应用在煤质检测、监测燃烧和排放等过程^[7-8]。

基金项目: 国家自然科学基金项目(51976064); 中央高校基本科研业务费专项资金(2022ZFJH04)。

Project Supported by National Natural Science Foundation of China (51976064); Fundamental Research Funds for the Central Universities (2022ZFJH04).

LIBS 技术分析燃煤样品主要有两种形式, 分别是由煤粉压制而成的煤饼和煤粉下落组成的颗粒流。在实际电厂生产中, 煤粉传输是以气固粉末流动的形式进行的, 因此直接测量颗粒流样品符合实际场景且无需进行样品处理, 更具有实时性和便捷性。但是将 LIBS 技术直接应用于颗粒流的检测存在一些固有的问题, 主要问题之一是由于颗粒流的流动不稳定性, 颗粒样品的不均匀性等因素会影响激光与颗粒的相互作用, 从而明显影响 LIBS 直接测量的准确性。另一个问题是由于锅炉系统的复杂性, 获取足够多数量的颗粒流光谱数据用于构建定标模型有一定的难度^[9]。目前解决颗粒流定量分析精确度问题的方法之一是引入更可靠的适用于 LIBS 检测颗粒流的数据处理及定量分析方法, 多元定标法^[10-11]、分类树^[12]、支持向量机^[13]、等离子体温度校正法^[14-15]以及采用金属靶面增强^[16]等方法均已被证明能在一定程度上提高了 LIBS 分析颗粒流的测量精度。但由于颗粒流波动的随机性, 基于数据处理方法对颗粒定量分析的优化方法的适用性和鲁棒性仍需进一步提升。相比之下, 由煤粉压制而成的压片样品因其表面光滑紧致, 可产生稳定的等离子体, 因此得到的光谱稳定性较好, 但若将压片测量模式应用于在线监测, 需要增加额外的样品预处理步骤, 使检测系统的实时性受到很大影响。因此考虑在颗粒流定标建模过程中, 可利用相对稳定的压片光谱数据来修正减小颗粒流数据的波动偏差。

在光谱分析领域, 在样品物理状态变化引起的误差修正及相关定量定性研究方面, 迁移学习作为一种广泛使用的深度学习方法, 可实现从源域迁移到相关的目标域^[17-18]。刘翠玲等^[19]采用迁移学习算法探究近红外光谱技术在食用油酸值的模型转移, 提高了模型的泛化能力。Yu 等^[20]使用 TrAdaBoost 算法在近红外光谱领域实现了跨类型样本的校准迁移, 提高了相同或相似物理性质的不同样本之间的定量模型的泛化能力。Yang 等^[21]通过 LIBS 技术作用于室温和高温样品组成的校准数据集所建立的迁移学习定量模型, 使得 Cr 浓度的平均绝对误差和相对误差分别降低了 1.8% 和 20.58%。Shabbir 等^[22]通过迁移学习算法有效校正物理基体效应, 提高了 LIBS 模型对表面不规则金属的预测性能, 证明了迁移学习对降低因样品形态变化而导致的物理基体效应的有效性。Sun 等^[23]研究压制粉末颗粒

和岩石之间的基体效应, 使用压片样品迁移模型对原始岩石光谱进行预测, 结果表明对于 SiO_2 的定量预测正确率从 33.3% 提高到 83.3%。

综上所述, 针对 LIBS 应用于煤粉颗粒流领域的定量分析问题, 本文从采用数据处理方法修正颗粒流的精确度出发, 提出一种基于 TrAdaBoost 迁移学习的定量分析方法, 将压片光谱数据迁移至颗粒流光谱数据, 以研究其对辅助提高颗粒流工业指标分析测量准确性的优化效果。

1 实验部分

1.1 实验装置

本文搭建的 LIBS 综合测量系统如图 1 所示。在激光器、光谱仪和光学镜片等设备保持不动的情况下, 通过颗粒流给粉系统和压片样品系统的切换, 实现同一光路下压片及颗粒流样品的光谱采集。实验采用波长 1064nm、频率 2Hz、脉宽 8ns 的 Nd:YAG 调 Q 脉冲激光器, 脉冲能量为 75mJ。激光通过 45° 的二向色镜 (透射范围: 825~1300nm, 反射范围: 200~785nm) 以及焦距为 100mm 的平凸透镜聚焦烧蚀样品表面产生等离子体, 等离子体通过四通道光纤光谱仪 (AvaSpec-2048; 波长范围为 178~827nm, 最小积分时间为 1.05ms) 进行光谱收集, 光谱采集延时为 400ns。颗粒流送粉系统主要由压电式振动给粉机 (PEF-90A)、调速控制器和锥型出口 (直径 4mm) 组成, 形成平均质量流量为 $(0.046 \pm 0.005) \text{g/s}$ 的煤粉颗粒流。压片系统是由样品固定架和三维移动平台组成, 通过固定架和三维平移台将压片样品固定在颗粒流粉末下落的中心处位置, 即激光通过聚焦透镜后保证在同一焦点位置烧蚀颗粒流及压片表面以下 2mm 处, 以确保有效稳定光谱的获得, 并有效减少空气击穿对测量的影响。

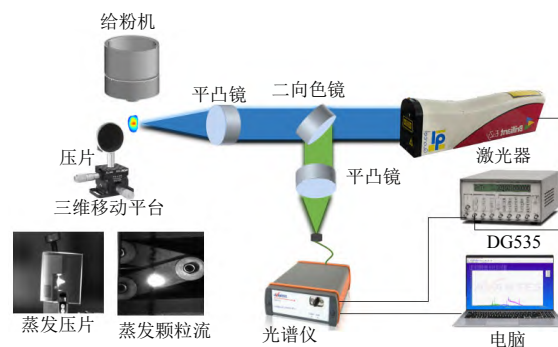


图 1 实验装置图

Fig. 1 Experimental setup

1.2 实验样品

为了避免单一煤种数据所建立模型的局限性,

提高该定量分析方法对煤种的适应性并验证其有效性,实验选用电厂常用的褐煤、烟煤、贫煤及无烟煤中的 43 个煤样作为样品,其工业分析指标值如表 1 所示,经过处理获得粒径小于 200 μm 的煤粉并放置于 45 $^{\circ}\text{C}$ 烘箱 4h 以制成空气干燥基。每个煤样称取 3.5g,使用设置压力为 10t、持续时间为 6s 的压片机将煤样品压成直径 25mm 的压片,其余作为颗粒流实验样品。每个颗粒流样品记录 300 次脉冲的光谱数据,每个压片样品记录 4 个点,每个点 30 个脉冲共 120 次脉冲的光谱数据。从中随机选择 35 个压片及颗粒流样品的光谱数据作为训练集,用于建立工业指标的定量分析模型。

表 1 实验样品工业指标信息
Table1 Representative proximate analysis
index of the coal samples

样本 序号	热值/ (MJ/Kg)	灰分/%	挥发 分/%	样本 序号	热值/ (MJ/Kg)	灰分/%	挥发 分/%
1	23.62	21.18	28.60	23	23.11	15.05	28.03
2	20.82	2.52	40.11	24	22.02	22.54	19.86
3	26.18	13.44	29.31	25	22.79	25.15	20.37
4	22.44	17.16	26.48	26	22.86	15.78	19.59
5	23.64	7.71	28.56	27	24.67	17.91	28.41
6	22.58	22.38	27.50	28	24.38	15.22	26.68
7	23.22	12.74	28.82	29	21.98	19.42	24.60
8	25.7	23.84	10.61	30	22.11	15.65	24.40
9	17.24	42.64	14.40	31	22.42	18.29	26.77
10	22.35	29.60	13.74	32	24.495	25.00	25.41
11	20.98	33.18	13.83	33	21.80	15.3	27.90
12	23.14	27.92	13.24	34	24.31	10.1	34.87
13	21.67	31.86	11.37	35	20.475	18.29	19.72
14	21.94	30.1	14.88	36	24.46	18.88	23.27
15	19.44	32.84	19.14	37	22.39	29.9	20.44
16	18.76	39.46	11.92	38	19.84	17.82	20.90
17	21.38	22.31	15.59	39	23.39	16.91	24.47
18	22.52	13.24	22.58	40	22.32	19.66	20.62
19	24.47	19.81	17.10	41	25.3	25.52	16.15
20	21.59	23.98	15.80	42	23.64	16.93	23.32
21	20.79	29.92	15.78	43	23.96	21.18	28.60
22	22.1	27.46	18.94	—	—	—	—

2 方法原理

2.1 样本划分方法

将压片光谱迁移至颗粒流建立回归模型时,当训练集和测试集数据分布不相似或压片数据与颗粒流数据相差较大时,会降低定量模型准确度。因此,在迁移之前需要选择合适的训练集样本。采用欧式距离的大小来表征代表性强的样本数据。第 i

个颗粒流训练集样本与第 j 个颗粒流预测集样本的光谱数据的欧式距离 d_{ij} 按式(1)计算:

$$d_{ij} = \sqrt{\sum_{k=1}^n (v)^2}$$
 (1)

式中: $i=1,2,\dots,35$, $j=1,2,\dots,8$; k 为参与定量分析的谱线数量; x_{ik} 为光谱强度。

依次计算出第 i 个颗粒流训练集样本与全部颗粒流预测集样本光谱强度的欧式距离 D_i , 计算 D_i 的平均值 $\bar{D}_i$, 将 $\bar{D}_i$ 的大小作为第 i 个颗粒流训练集样本与预测集样本的相似性程度, 对 $\bar{D}_i$ 进行升序排列, 该值越小则表示与颗粒流预测集样本的相似度越高, 在训练集优先被选择。根据此准则, 当需要 p 个样本作为迁移目标数据集时, 选择排序后 $\bar{D}_i$ 值小的前 p 个样本的光谱数据。此外, 为保证迁移目标数据集样品的特征指标的分布范围与梯度, 提高对特征指标的准确预测范围, 当按照欧式距离平均值筛选出的迁移目标数据集中存在特征指标分布相近样品时, 对目标数据集优化筛选, 剔除的部分样品数据选取 $\bar{D}_i$ 值排序更靠后的样品数据进行替换。

2.2 基于 TrAdaBoost 算法的定量模型

TrAdaBoost 算法^[17,24]是在 AdaBoost 算法上的演变, 当针对回归问题时, 基于误差标准计算权重来弱化预测不准的数据, 通过迭代后, 源域中与目标域相似样本的权重就会提高, 而其他的源域的权重会降低, 从而提高回归模型的效果。在本文中, 选择 CART 回归树算法作为基学习器, 输入量为全部谱线的光谱强度, 输出量为挥发分、灰分、热值的预测结果。其主要步骤为:

1) 初始化设置。将源领域训练数据(X_s)和目标领域训练数据(X_a)的数据合并, 形成新的训练集 X , 计算初始化训练集 X 各样本的权重向量值 w_i^1 。

$$w_i^1 = \begin{cases} 1/n, & i = 1, 2, \dots, n \\ 1/m, & i = n + 1, \dots, n + m \end{cases}$$
 (2)

式中: n 、 m 为源域 X_s 和目标域 X_a 的样本数量, 且 $n>m$; N 为最大迭代次数。

2) 计算误差。每一次迭代中建立回归模型, 计算个体回归器的预测误差率 ε_t 。

$$\varepsilon_t = \sum_{i=n+1}^{n+m} \frac{w_i^t |f_i(x_i) - h(x_i)|}{\max_{i=n+1} |f_i(x_i) - h(x_i)|}$$
 (3)

式中: $f_i(x_i)$ 为个体回归器的预测值; $h(x_i)$ 为样品对应指标的实际值; $\max[f_i(x_i) - h(x_i)]$ 为单次迭代中预测

值与真实值的最大误差。为了避免算法停止, 当误差率 $\varepsilon_t < 10^{-5}$ 时, 停止迭代。

3) 权重更新。每一次迭代后, 对于预测误差率小的样本, 则增加其权重值, 反之则降低权重, 以降低该样本在回归器中的影响。重新调整的样本权重 w_i^{t+1} , 个体回归器权重 α_t 按式(4)~(6)计算:

$$\text{迭代参数 } \beta_t = \frac{\varepsilon_t}{1 - \varepsilon_t} \quad (4)$$

$$w_i^{t+1} = \begin{cases} w_i^t \beta_t^{|f_t(x_i) - h(x_i)|}, & i = 1, 2, \dots, n \\ w_i^t \beta_t^{-|f_t(x_i) - h(x_i)|}, & i = n+1, \dots, n+m \end{cases} \quad (5)$$

$$\alpha_t = \frac{1}{2} \ln \frac{1}{\beta_t} \quad (6)$$

4) 加权集成强回归器。达到最大迭代次数后, 将迭代得到的个体弱回归器 f_t 进行加权集成, 得到最终的强回归模型 $F(x)$ 。

3 结果与讨论

3.1 压片与颗粒流的光谱相关性

为比较激光作用于压片和颗粒流形态下燃煤激光光谱特性, 以研究迁移学习方法在煤质工业指标定量分析的可行性, 首先采用信噪比法分别对压片及颗粒流形态的光谱数据进行有效光谱筛选, 以样品 31 为例, 得到平均后的有效光谱, 如图 2 所示。信噪比是特征元素谱线强度与背景的标准差之比, 作为判断波峰的指标。通过设定合适的信噪比值作为筛选阈值, 计算煤中主要特征元素 C 位于 247.8 nm 谱线强度的信噪比值, 当低于阈值时, 认定该次脉冲为无效击穿, 从而准确识别无效光谱, 对其进行剔除处理。

从图 2 可以看出, 各通道的光谱所包含的背景辐射信息不同, 致使基线存在一定的差别, 对于第 4 通道(600~627nm)的光谱还同时包括了等离子体火焰的连续辐射光谱, 致使该波段的光谱存在较大波动。总体而言, 压片样品数据的谱线强度上高于颗粒流, 同时光谱中元素特征峰相较于背景光谱更为明显, 也包含更多的特征元素信息, 而颗粒流光谱数据的相邻波长之间的波动显然高于压片光谱。主要由于颗粒流中颗粒之间存在气体, 导致激光作用于样品表面的颗粒密度相较于紧实的压片表面小得多, 激光烧蚀量更小, 更少的样品被蒸发电离。同时空气运动存在的气流作用导致颗粒之间的能量传递受到削弱与干扰, 颗粒流表面产生的等离子体温度更低, 因此颗粒流的谱线强度较弱且稳定性

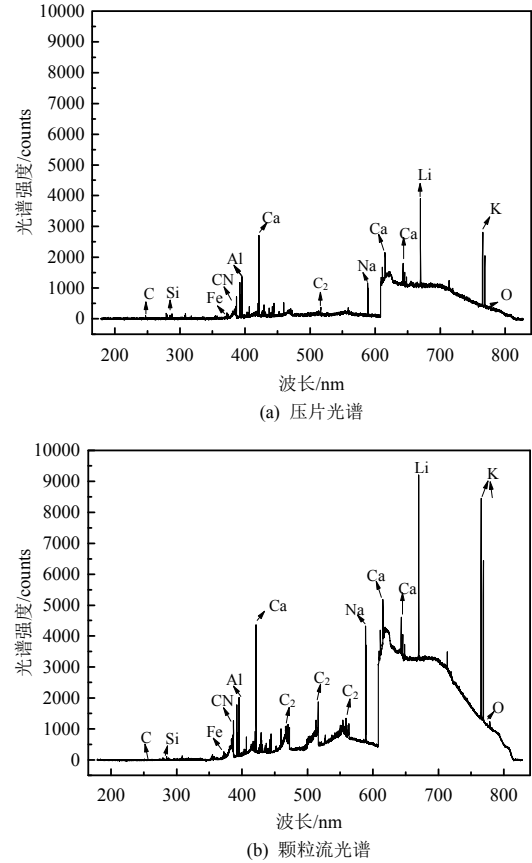


图 2 激光与不同状态煤粉作用产生的光谱比较

Fig. 2 Comparison of spectra data from laser ablation of coal samples with different forms

差。在一定程度上表明, 激光作用于两种物理形态下的光谱数据具有相似性。

为进一步量化研究压片和颗粒流形态下的光谱相关性, 采用皮尔逊相关系数评价二者光谱数据之间的线性关系, 按式(7)进行计算:

$$\rho(a, b) = \frac{\text{Cov}(a, b)}{\sqrt{\text{Var}(a)} \times \sqrt{\text{Var}(b)}} \quad (7)$$

式中: $\rho(a, b)$ 为皮尔逊相关系数; $\text{Cov}(a, b)$ 为 a 与 b 之间的协方差, 在本研究中为压片与颗粒流状态下对应的光谱数据; $\text{Var}(a)$ 、 $\text{Var}(b)$ 是 a 与 b 的方差。

皮尔逊相关系数越大, 证明两个变量之间的线性相关程度越大。计算同一样品在不同激光能量以及延时时间条件下获得的压片和颗粒流的光谱数据的皮尔逊相关系数, 结果如图 3 所示, 两者数据在相同实验系统相同条件下的相关系数总体上达到 0.93 以上, 表明存在高度的线性相关性。但在不同的实验条件下, 颗粒流数据与压片数据之间的皮尔逊相关系数不同。主要是因为颗粒流与压片样品是属于两种不同的形态, 激光与不同形态样品的作用机制不同, 所产生的等离子体形态、演化特性等

均存在一定的差异^[25]。激光能量和延迟时间是影响等离子体特性的主要实验参数,同时由于这些参数对等离子体的影响不是简单的线性关系,致使当实验条件改变后,两种样品状态的光谱响应不完全一致,不是简单的线性耦合的关系,致使得到的相关系数存在差别。但总体上激光作用在压片及颗粒流样品的光谱具有一定的相似及线性相关性,能够采用迁移学习算法进行定量分析。

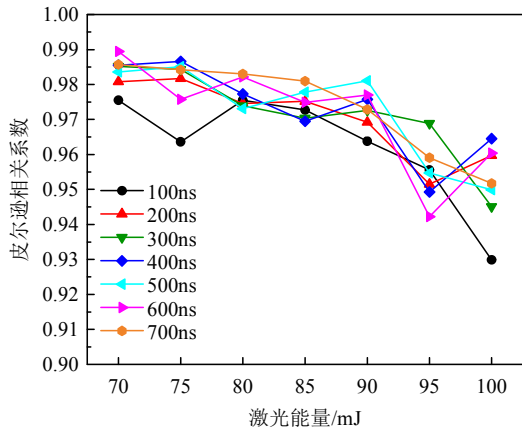


图 3 不同实验条件下压片和颗粒流状态煤粉光谱的皮尔逊相关系数

Fig. 3 Pearson's correlation coefficients of spectra data from laser interaction with coal pellet and particle flow under different experimental conditions

3.2 基于迁移学习的定量分析结果

在定量分析中,训练集样本的选择决定模型的输入会影响最后的预测结果。为了探究训练样本中源域和目标领域样本对定量方法的影响,采用不同数量的颗粒流光谱数据作为目标域数据加入训练集中,通过基于欧式距离的样本划分方式,以挥发分的预测集为例,按照表 2 进行训练集的选择。

在使用 TrAdaBoost 算法的定量分析过程中,通过不同源域压片数据 X_s 和目标域颗粒流数据 X_a 的组合,以工业指标预测结果与实际值的决定系数 (R^2)与相对标准偏差(root mean square error, RMSE)作为评估定量分析效果的标准,得到最终的预测模型结果,以挥发分定量分析为例,如图 4 所示。由中可以看出,当训练数据集中只有压片数据时,由压片数据直接预测颗粒流数据,无法迁移学习颗粒流数据,因此预测结果的准确度较低。当可迁移颗粒流样本 X_a 数量从 0 上升到 10 时,预测模型的 R^2 提高效果非常明显,从 0.38 增加到 0.85,这表明 TrAdaBoost 算法使得压片数据具有较强的学习能力,预测颗粒流数据的能力有较大的提升。随着目

表 2 以挥发分含量为例的回归模型的输入训练集

Table 2 Input training sets for regression model using volatile content as an example

预测集样品编号		训练集样品编号
号(颗粒流)	源域(压片) X_s	目标域(颗粒流) X_a
—		
2, 6, 12, 18, 36		
1, 2, 6, 8, 10, 18, 20, 24, 30, 36		
2, 5, 8, 9, 16, 19, 24, 29, 30, 34, 35, 36, 37, 41, 42		
1, 6, 7, 9, 10, 15, 16, 18, 21, 24, 26, 28, 30, 32, 33, 35, 36, 37, 39, 42		
3, 4, 13, 14, 22, 23, 31, 38	除预测集之外的 35 个样品	1, 2, 6, 7, 8, 9, 11, 12, 15, 16, 17, 18, 19, 20, 24, 26, 28, 29, 33, 34, 35, 40, 41, 42, 43
1, 2, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 15, 16, 17, 18, 19, 20, 24, 25, 26, 28, 29, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 40, 41, 42, 43		
除预测集之外的 35 个样品		

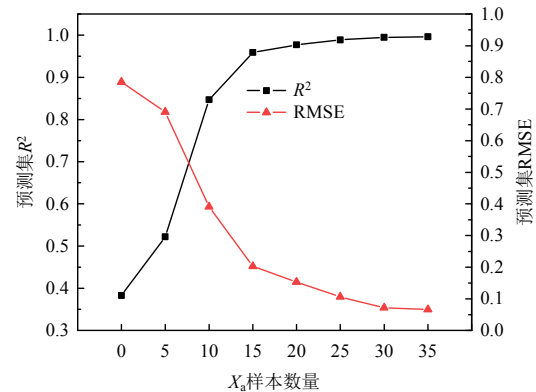


图 4 训练集中引入不同数量的颗粒流样品数据对挥发分含量预测结果的影响

Fig. 4 Effect of different amounts of spectral data from particle flow samples introduced in training sets on the prediction results of volatile matter content

标领域颗粒流数据 X_a 数量的增加,压片数据能够学习迁移的样本增加,因此对挥发分的预测误差逐渐减小。

针对于热值及灰分指标,不同的颗粒流数据 X_a 对预测结果的影响如表 3 所示。当颗粒流样本 X_a 数量从 0 上升到 20 时,预测模型的 R^2 提高效果非常明显,预测误差也明显降低,但当目标域中样本数据增加到一定程度时,热值及灰分的预测精度出现下降再上升的趋势,这是由于特征指标的范围与梯度差异引起的。每一个个体回归器都是在上一次迭代时的训练误差基础上调整训练数据集得到的,模型的预测精度很大程度取决于训练集数据,当训练集内的各样品光谱数据相似度较高,则会导致过

拟合从而影响模型质量。

表 3 训练集中引入不同数量的颗粒流样品数据对热值、灰分含量预测结果的影响

Table 3 Effect of different amounts of spectral data from particle flow samples introduced in training sets on the prediction results of calorific value and ash content				
颗粒流 X_a 数量	热值预测结果		灰分预测结果	
	R^2	RMSE/(MJ/kg)	R^2	RMSE/%
0	0.143	0.926	0.209	0.890
5	0.435	0.752	0.600	0.632
10	0.584	0.645	0.730	0.520
15	0.830	0.413	0.790	0.458
20	0.882	0.344	0.937	0.252
25	0.839	0.401	0.818	0.426
30	0.841	0.399	0.896	0.323
35	0.934	0.256	0.850	0.387

为进一步验证模型的性能，通过对比分析基于 TrAdaBoost 迁移学习算法和其他算法的煤粉颗粒流定量分析结果，以评估其模型的有效性。选择与偏最小二乘回归法(PLSR)的模型进行比较，建立不同数量训练集下的挥发分最佳回归模型，预测结果如表 4 所示。两种算法的模型结果具有相同的变化趋势，但采用迁移学习算法的预测精度明显高于 PLSR 模型。当训练集中包含 35 个压片和 35 个颗粒流样本数据时，采用 PLSR 算法和 TrAdaBoost 算法建立的颗粒流挥发分预测模型的预测效果均达到最优，分别是 0.926 和 0.996，说明 TrAdaBoost 迁移学习算法具有更高的测量精度。原因是压片和颗粒流数据具有非线性特征，TrAdaBoost 算法使压片数据能够迁移获取颗粒流光谱特征，因此有效优化了训练集，使得模型输入数据具有更高的稳定

表 4 不同算法下建立的挥发分含量预测结果

Table 4 Volatile matter content prediction results established under different algorithms			
训练集样本	算法	挥发分预测结果	
		R^2	RMSE
35 个压片+5 个颗粒流样本	PLSR	0.400	0.77
	TrAdaBoost	0.522	0.691
35 个压片+10 个颗粒流样本	PLSR	0.446	0.745
	TrAdaBoost	0.847	0.391
35 个压片+15 个颗粒流样本	PLSR	0.772	0.477
	TrAdaBoost	0.959	0.203
35 个压片+20 个颗粒流样本	PLSR	0.779	0.47
	TrAdaBoost	0.977	0.153
35 个压片+25 个颗粒流样本	PLSR	0.828	0.414
	TrAdaBoost	0.989	0.106
35 个压片+30 个颗粒流样本	PLSR	0.900	0.316
	TrAdaBoost	0.995	0.072
35 个压片+35 个颗粒流样本	PLSR	0.926	0.272
	TrAdaBoost	0.996	0.066

性，从而提高 LIBS 测量煤粉颗粒流的定量分析准确度。

为验证基于 TrAdaBoost 方法在 LIBS 煤粉颗粒流的定量分析具有一定的通用性，采用与挥发分相同的建模过程，分别用 PLSR 算法和 TrAdaBoost 算法建立不同样本数量下的热值、灰分定量模型，结果如图 5 所示。可以看出，采用迁移学习算法建立模型所得的热值、灰分建模结果，均表现为当颗粒流训练集数据增加到一定量后，预测结果的 R^2 出现先上升再降低的过程。这主要是因为迁移算法中，由于过量的辅助领域的颗粒流数据对于测试集的目标领域数据产生了负迁移效果，导致定量模型的预测能力降低。对于热值指标，当训练集中包含 35 个压片和 35 个颗粒流样本数据时，预测集 R^2 达到最大值，由此确定的最佳目标域颗粒流数据 X_a 为 35 个。对于灰分指标，当训练集中包含 35 个压片和 20 个颗粒流样本数据时，预测集 R^2 达到最

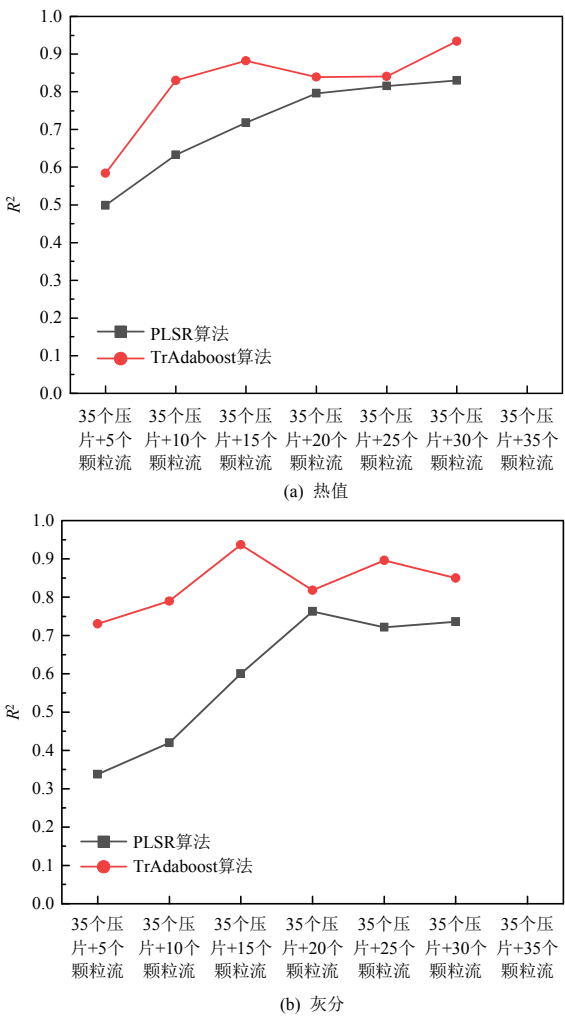


图 5 不同算法对热值、灰分定标模型的影响
Fig. 5 Effect of different algorithms on the prediction results of calorific and ash value

大值,由此确定的最佳目标域颗粒流数据 X_a 为 20 个。热值、灰分在两种算法下得到的最优预测模型结果如表 5、6 所示,相较于采用 PLSR 定量分析模型,采用 TrAdaBoost 算法建立的热值与灰分模型预测结果均得到了有效提升,其中热值的预测结果 R^2 由 0.830 提到 0.934,均方根误差 RMSE 从 0.412MJ/kg 降低到 0.256MJ/kg;灰分预测结果的 R^2 由 0.763 提到 0.937, RMSE 从 0.487%降低到 0.252%。

表 5 两种算法下的热值最优预测结果

Table 5 Optimal prediction results of calorific value under two algorithms

样本	参考值/ (MJ/kg)	PLSR 预测值/(MJ/kg)	TrAdaBoost 预测值/(MJ/kg)
V1	23.62	23.49	23.79
V2	25.70	23.89	25.05
V3	23.62	23.49	23.79
V4	20.98	20.51	22.07
V5	18.76	18.19	19.08
V6	22.86	23.8	23.03
V7	21.98	22.66	21.56
V8	22.39	22.26	22.47

表 6 两种算法下的灰分最优预测结果

Table 6 Optimal prediction results of ash value under two algorithms

样本	参考值/%	PLSR 预测值/%	TrAdaBoost 预测值/%
V1	29.6	26.54	25.9
V2	32.84	32.15	32.27
V3	29.6	26.54	25.9
V4	22.31	18.08	22.38
V5	15.05	9.58	17.06
V6	7.63	9.85	8.91
V7	18.88	23.65	17.91
V8	16.93	21.62	19.05

综上所述,基于 TrAdaBoost 迁移学习的定量分析方法能够降低模型的预测误差,有效地提高煤粉颗粒流的定量分析精度。

4 结论

本文提出基于 TrAdaBoost 算法的煤粉颗粒流 LIBS 定量分析方法,得到的主要结论如下:

1) 激光作用在压片及颗粒流样品的光谱具有一定的相似及线性相关性;

2) 根据不同特征指标选择合适数量的颗粒流数据作为 TrAdaBoost 算法模型的输入,保证数据

具有更高的稳定性;

3) 与传统的回归模型相比,TrAdaboost 方法将最优挥发分预测模型的决定系数分别从 0.926 提升至 0.996, RMSE 也相应地从 0.272%降低至 0.066%;

4) TrAdaBoost 算法的引入为 LIBS 煤粉颗粒流检测的实际应用提供可行且可靠的测量处理方法。

参考文献

- [1] 陈浮,于昊辰,卞正富,等.碳中和愿景下煤炭行业发展的危机与应对[J].煤炭学报.2021,46(06):1808-1820. CHEN Fu, YU Haochen, BIAN Zhengfu, et al. How to handle the crisis of coal industry in China under the vision of carbon neutrality[J]. Journal of China Coal Society, 2021, 46(06): 1808-1820(in Chinese).
- [2] 辛保安,陈梅,赵鹏,等.碳中和目标下考虑供电安全约束的我国煤电退减路径研究[J].中国电机工程学报,2022,42(19):6919-6930. XIN B, CHEN M, ZHAO P, et al. Research on coal power generation reduction path considering power supply adequacy constraints under carbon neutrality target in china[J]. Proceedings of the CSEE, 2022, 42(19): 6919-6930(in Chinese).
- [3] 李良钰,谭厚章,王学斌,等.高氯煤的研究进展和应用技术现状[J].中国电机工程学报,2022,42(11):4040-4060. LI L, TAN H, WANG X, et al. Research progress and applied technical status of high chlorine coal utilization [J]. Proceedings of the CSEE, 2022, 42(11): 4040-4060(in Chinese).
- [4] NOLL R, FRICKE-BEGEMANN C, CONNEMANN S, et al. LIBS analyses for industrial applications - an overview of developments from 2014 to 2018[J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2018, 33(6): 945-956.
- [5] CHENG X, YANG X, ZHU Z, et al. On-stream analysis of iron ore slurry using laser-induced breakdown spectroscopy[J]. Applied Optics, 2017, 56(33): 9144-9149.
- [6] WINEFORDNER J D, GORNUSHKIN I B, CORRELL T, et al. Comparing several atomic spectrometric methods to the super stars: special emphasis on laser induced breakdown spectrometry, LIBS, a future super star[J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2004, 19(9): 1061-1083.
- [7] GAFT M, DVIR E, MODIANO H, et al. Laser induced breakdown spectroscopy machine for online ash analyses in coal[J]. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 2008, 63(10): 1177-1182.
- [8] YUAN T, WANG Z, LUI S L, et al. Coal property

- analysis using laser-induced breakdown spectroscopy[J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2013, 28(7): 1045-1053.
- [9] ZHANG L, YIN W, DONG L, et al. Stability enhanced online powdery cement raw materials quality monitoring using laser-induced breakdown spectroscopy[J]. IEEE Photonics Journal, 2017, 9(5): 1-10.
- [10] ZHENG J, LU J, ZHANG B, et al. Experimental study of laser-induced breakdown spectroscopy(LIBS) for direct analysis of coal particle flow[J]. Applied spectroscopy, 2014, 68(6): 672-679.
- [11] LI W, DONG M, LU S, et al. Improved measurement of the calorific value of pulverized coal particle flow by laser-induced breakdown spectroscopy(LIBS)[J]. Analytical Methods, 2019, 11(35): 4471-4480.
- [12] PALÁSTI D J, METZINGER A, AJTAI T, et al. Qualitative discrimination of coal aerosols by using the statistical evaluation of laser-induced breakdown spectroscopy data[J]. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 2019, 153(3): 34-41.
- [13] 郭志卫, 孙兰香, 张鹏, 等. 基于 LIBS 技术的水泥粉末在线成分分析[J]. 光谱学与光谱分析, 2019, 39(1): 278-285.
- GUO Zhiwei, SUN Lanxiang, ZHANG Peng, et al. On-line component analysis of cement powder using LIBS technology[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2019, 39(1): 278-285(in Chinese).
- [14] WANG Z, DEGUCHI Y, KUWAHARA M, et al. Quantitative elemental detection of size-segregated particles using laser-induced breakdown spectroscopy[J]. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 2013, 87: 130-138.
- [15] WANG Z, LIU R, DEGUCHI Y, et al. Detection improvement of unburned carbon content in fly ash flow using LIBS with a two-stage cyclone measurement system[J]. Energy & Fuels, 2019, 33(8): 7805-7812.
- [16] YU Z, YAO S, ZHANG L, et al. Surface-enhanced laser-induced breakdown spectroscopy utilizing metallic target for direct analysis of particle flow[J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2019, 34(1): 172-179.
- [17] 庄福振, 罗平, 何清, 等. 迁移学习研究进展[J]. 软件学报, 2015, 26(1): 26-39.
- ZHUANG Fuzhen, LUO Ping, HE Qing, et al. Survey on transfer learning research[J]. Journal of Software, 2015, 26(1): 26-39(in Chinese).
- [18] 戴文渊. 基于实例和特征的迁移学习算法研究[D]. 上海: 上海交通大学, 2009.
- DAI Wenyuan. Instance-based and feature-based transfer learning[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2009(in Chinese).
- [19] 刘翠玲, 周子彦, 李天瑞, 等. 迁移学习在食用油光谱模型转移中的应用[J]. 食品科学技术学报, 2019, 37(4): 95-102.
- LIU Cuiling, ZHOU Ziyang, LI Tianrui, et al. Application of migration learning in transfer of oil spectral model[J]. Journal of Food Science and Technology, 2019, 37(4): 95-102(in Chinese).
- [20] YU Y, HUANG J, LIU S, et al. Cross target attributes and sample types quantitative analysis modeling of near-infrared spectroscopy based on instance transfer learning[J]. Measurement, 2021, 177(6): 109340.
- [21] YANG J, LI X, LU H, et al. An LIBS quantitative analysis method for alloy steel at high temperature based on transfer learning[J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2018, 33(7): 1184-1195.
- [22] SHABBIR S, ZHANG Yuqing, SUN Chen, et al. Transfer learning improves the prediction performance of a LIBS model for metals with an irregular surface by effectively correcting the physical matrix effect[J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2021, 36(7): 1441-1454.
- [23] SUN C, XU W, TAN Y, et al. From machine learning to transfer learning in laser-induced breakdown spectroscopy analysis of rocks for Mars exploration[J]. Scientific Reports, 2021, 11(1): 21379.
- [24] 刘鑫鹏, 栾悉道, 谢毓湘, 等. 迁移学习研究和算法综述[J]. 长沙大学学报, 2018, 32(5): 28-31, 36.
- LIU Xinpeng, LUAN Xidao, XIE Yuxiang, et al. Transfer learning research and algorithm review[J]. Journal of Changsha University, 2018, 32(5): 28-31, 36(in Chinese).
- [25] CHEN Y, DONG M, CAI J, et al. An image auxiliary method for laser-induced breakdown spectroscopy analysis of coal particle flow [J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2022, 37(5): 1126-1133.



陈翊翔

在线出版日期: 2023-07-28。

收稿日期: 2022-06-28。

作者简介:

陈翊翔(1998), 女, 硕士研究生, 研究方向为激光测量与诊断技术在燃烧领域的应用, cyxclaire@163.com;

*通信作者: 董美蓉(1985), 女, 副教授, 博士生导师, 研究方向为基于先进检测技术的工业过程关键参数检测及能源物质定向转化机制, epdongmr@scut.edu.cn。

(编辑 张文鑫)

Quantitative Analysis of Coal Particle Flow by Laser Induced Breakdown Spectroscopy Based on TrAdaBoost Algorithm

CHEN Yixiang, DONG Meirong*, CAI Junbin, CHEN Hongjie, SHANG Zihan, LU Jidong

(School of Power Electric College, South China University of Technology, Guangzhou 510640, Guangdong Province, China)

KEY WORDS: LIBS; quantitative analysis of coal; particle flow; transfer learning; TrAdaBoost

In the Laser Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) detection process of coal particle flow, the unstable fluctuation of particle flow affects the stability of laser-material interaction, which has a negative effect on the quantitative analysis results. In this work, a LIBS setup for coal particle flow and pellet detection (Fig. 1) is established for the investigation on quantitative detection optimization of particle flow.

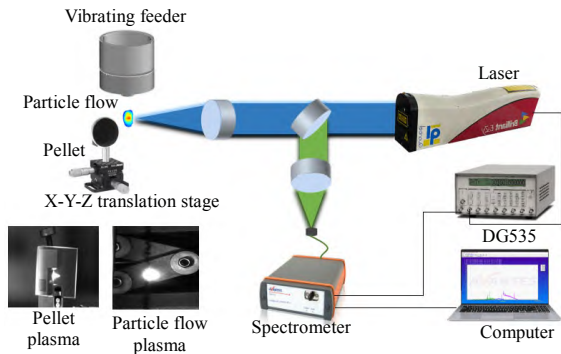


Fig. 1 LIBS experimental setup

The stable spectral data from the pressed pellet coal samples are migrated during calibration modeling to correct the fluctuation bias of the particle flow data. By investigating the similarity of the spectral properties in the coal pellet and particle flow, a regression prediction model incorporating both data is built. In order to explore the influence of the number of pellet and particle flow spectral data input on the quantitative model, different amounts of particle flow spectral data are added to the training set, and the optimal value is obtained based on the quantitative analysis results of volatile matter (Fig. 2).

To further verify the performance of the model, the quantitative results of pulverized coal particle flow based on TrAdaBoost transfer learning algorithm are used to evaluate the effectiveness of the model. The results in Table 1, 2 show that the coefficients of determination of the calorific value and ash content of coal quantification analysis models using TrAdaBoost reach 0.934 and 0.937, respectively, which are significantly improved compared with the conventional prediction models for particle flow using the PLSR algorithm. The root mean square error

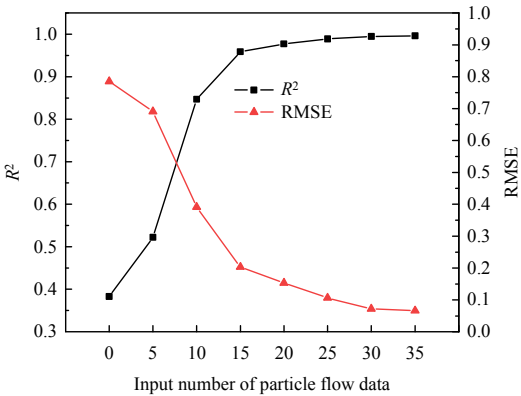


Fig. 2 Effect of different amounts of spectral data from particle flow samples introduced in training sets on the prediction results of volatile matter content

(RMSE) is also lower from 0.412MJ/kg to 0.256MJ/kg for calorific value and from 0.487% to 0.252% for ash value. The measurements demonstrate that the introduction of TrAdaBoost algorithm can provide a feasible and reliable measurement processing method for the practical application of LIBS pulverized coal particle flow detection.

Table 1 Optimal prediction results of calorific value under two algorithms

Samples	Reference/ (MJ/kg)	Predictive value(MJ/kg)	
		PLSR	TrAdaBoost
V1	23.62	23.49	23.79
V2	25.70	23.89	25.05
V3	23.62	23.49	23.79
V4	20.98	20.51	22.07
V5	18.76	18.19	19.08
V6	22.86	23.8	23.03
V7	21.98	22.66	21.56
V8	22.39	22.26	22.47

Table 2 Optimal prediction results of ash value under two algorithms

Samples	Reference/%	Predictive value(wt.%)	
		PLSR	TrAdaBoost
V1	29.6	26.54	25.9
V2	32.84	32.15	32.27
V3	29.6	26.54	25.9
V4	22.31	18.08	22.38
V5	15.05	9.58	17.06
V6	7.63	9.85	8.91
V7	18.88	23.65	17.91
V8	16.93	21.62	19.05